EP0617077A1 19940928 Composition comprising an unsaturated elastomer and a plasticizer of the family of polyphenyl methanes Assignee/Applicant: ATOCHEM ELF SA Inventor(s): HERT MARIUS; MAINDRON GUY; COMMANDEUR RAYMOND Priority (No,Kind,Date): FR9303304 A 19930323 I Application(No,Kind,Date): EP94400563 A 19940315 IPC: 5C 08K 5/01 A Language of Document: FRE Abstract:

L'invention concerne une composition comprenant un élastomÃ"re insaturé et un plastifiant de la famille des polyphénylméthanes en quantité suffisante pour abaisser la température de transition vitreuse de l'élastomÃ" re pour en faire un caoutchouc. L'élastomÃ"re insaturé est choisi parmi le polynorbornÃ"ne, le SBR ou le polybutadià ne. Les polyphenylméthanes peuvent Ãatre du dibenzyltoluà ne, tribenzyltoluÃ" ne ou des polybenzyltoluÃ" nes.

Legal Stat	us:		,
Date	+/-	Code	Description
19940928	(+)	17P	REQUEST FOR EXAMINATION FILED Effective date: 19940318;
19940928	(+)	AK	DESIGNATED CONTRACTING STATES: Kind code of corresponding patent document: A1; AT BE CH DE DK ES FR GB GR IE IT LI LU NL PT SE
19960313	(+)	17Q	FIRST EXAMINATION REPORT Effective date: 19960130;
19960828	` .	REF	CORRESPONDS TO: Corresponding patent document: 141938; Country code of corresponding patent document: AT; Publication date of corresponding patent document: 19960915; Kind code of corresponding patent document: T;
19960828	(+)	AK :	DESIGNATED CONTRACTING STATES; Kind code of corresponding patent document: B1; AT BE CH DE DK ES FR GB GR IE IT LI LU NL PT SE
19961002		REF	CORRESPONDS TO: Corresponding patent document: 69400411; Country code of corresponding patent document: DE; Publication date of corresponding patent document: 19961002;
19961002		REG	REFERENCE TO A NATIONAL CODE: IE; : FG4D; : 69622;
19970203	(-)	NLV1	NL: LAPSED OR ANNULED DUE TO FAILURE TO FULFILL THE
	( )		REQUIREMENTS OF ART. 29P AND 29M OF THE PATENTS ACT; NO LEGAL EFFECT FROM
19970226	(-)	GBV	GB: EP PATENT (UK) TREATED AS ALWAYS HAVING BEEN VOID IN ACCORDANCE WITH GB SECTION 77(7)/1977 Effective date: 19960828;
19970423		REG	REFERENCE TO A NATIONAL CODE: IE; : FD4D; Corresponding patent document: 69622;
19970820	(+)	26N	NO OPPOSITION FILED
19970930	(-)	BERE	BE: LAPSED New owner name: S.A. ELF ATOCHEM; Effective date: 19970331;
19971114		REG	REFERENCE TO A NATIONAL CODE: CH; : PL;
19980130		REG	REFERENCE TO A NATIONAL CODE: FR; : ST;
20020306	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE : AT; Effective date: 19960828;
20020306	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE : BE; Effective date: 19970331;
20020306	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE : CH; Effective date: 19970331;
20020306	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE : DE; Effective date: 19961129;
20020306	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE : DK; Effective date: 19960828;
20020306	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE : GB; Effective date:

```
19960828;
 20020306
            (-)
                  25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE : GR; Effective date:
                       19960828;
 20020306
            (-)
                  25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE : IE; Effective date:
                       19970416;
 20020306
            (-)
                  25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE : IT; Effective date:
                       19960828;
 20020306
            (-)
                  25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE: LI; Effective date: 19970331;
 20020306
            (-)
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE: LU; Effective date:
                  25
                       19970331;
 20020306
            (-)
                 25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE: PT; Effective date:
                       19961128;
 20020306
            (-)
                 25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE : SE; Effective date:
                       19961128;
 20020626
           (-)
                 25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE : AT; Effective date:
                       19960828:
 20020626
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE : BE; Effective date:
            (-)
                 25
                       19970331;
 20020626
           (-)
                 25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE : CH; Effective date:
                       19970331;
 20020626
           (-)
                 25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE : DE; Effective date:
                       19961129;
20020626
           (-)
                 25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE : DK; Effective date:
                       19960828;
20020626
           (-)
                 25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE: ES; Effective date:
                       19960828;
20020626
           (-)
                 25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE : GB; Effective date:
                       19960828;
20020626
           (-)
                 25
                       LAPSED IN A CONTRACTING STATE : GR; Effective date:
                       19960828;
                      LAPSED IN A CONTRACTING STATE : IE; Effective date:
20020626
           (-)
                 25
                       19970416;
20020626
           (-)
                 25
                      LAPSED IN A CONTRACTING STATE: IT; Effective date:
                      19960828:
20020626
                      LAPSED IN A CONTRACTING STATE: LI; Effective date: 19970331;
           (-)
                 25
20020626
           (-)
                 25
                      LAPSED IN A CONTRACTING STATE: LU; Effective date:
                      19970331;
20020626
                      LAPSED IN A CONTRACTING STATE: PT; Effective date:
           (-)
                 25
                      19961128;
20020626 (-)
                 25
                      LAPSED IN A CONTRACTING STATE : SE; Effective date:
                      19961128;
20030219 (-)
                      LAPSED IN A CONTRACTING STATE: AT; Effective date:
                 25
                      19960828:
20030219
          (-)
                25
                      LAPSED IN A CONTRACTING STATE : BE; Effective date:
                      19970331;
20030219 (-)
                      LAPSED IN A CONTRACTING STATE : CH; Effective date:
                25
                      19970331;
20030219
          (-)
                25
                      LAPSED IN A CONTRACTING STATE : DE; Effective date:
                      19961129;
20030219
          (-)
                25
                      LAPSED IN A CONTRACTING STATE : DK; Effective date:
                      19960828;
20030219 (-)
                25
                      LAPSED IN A CONTRACTING STATE: ES; Effective date:
                      19960828;
```

20030219	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE :: GB; Effective date:
20030219	(-)	25	19960828; LAPSED IN A CONTRACTING STATE: GR; Effective date: 19960828;
20030219	(-)	25	
20030219	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE: IT; Effective date: 19960828;
20030219	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE: LI; Effective date: 19970331;
20030219	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE: LU; Effective date: 19970331;
20030219	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE : NL; Effective date: 19960828;
20030219	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE : PT; Effective date: 19961128;
20030219	(-)	25	LAPSED IN A CONTRACTING STATE : SE; Effective date: 19961128

.

(11) EP 0 617 077 B1

(12)

# **FASCICULE DE BREVET EUROPEEN**

- (45) Date de publication et mention de la délivrance du brevet:28.08.1996 Bulletin 1996/35
- (51) Int Cl.<sup>6</sup>: **C08K 5/01**, C08L 9/00, C08L 65/00
- (21) Numéro de dépôt: 94400563.6
- (22) Date de dépôt: 15.03.1994
- (54) Composition comprenant un élastomère insaturé et un plastifiant de la famille des polyphénylméthanes

Zusammensetzung bestehend aus einem ungesättigten Elastomer und einem Weichmacher aus der Familie der Polyphenylmethanen

Composition comprising an unsaturated elastomer and a plasticizer of the family of polyphenyl methanes

- (84) Etats contractants désignés:
  AT BE CH DE DK ES FR GB GR IE IT LI LU NL PT
  SE
- (30) Priorité: 23.03.1993 FR 9303304
- (43) Date de publication de la demande:28.09.1994 Bulletin 1994/39
- (73) Titulaire: ELF ATOCHEM S.A. F-92800 Puteaux (FR)
- (72) Inventeurs:
  - Hert, Marius
     F-27470 Serquigny (FR)

- Maindron, Guy
  F-60940 Angicourt (FR)
  Commandeur, Raymond
- Commandeur, Raymond F-38220 Vizille (FR)
- (56) Documents cités: **DE-B- 1 138 923** 
  - CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 82, no. 8, 24
     Février 1975, Columbus, Ohio, US; abstract no. 44703d, ISHIKAWA H. ET AL. 'RUBBER COMPOSITIONS' page 76; colonne 1;

P 0 617 077 B1

Il est rappelé que: Dans un délai de neuf mois à compter de la date de publication de la mention de la délivrance du brevet européen, toute personne peut faire opposition au brevet européen délivré, auprès de l'Office européen des brevets. L'opposition doit être formée par écrit et motivée. Elle n'est réputée formée qu'après paiement de la taxe d'opposition. (Art. 99(1) Convention sur le brevet européen).

#### Description

15

20

30

40

La présente invention est une composition comprenant un élastomère insaturé et un plastifiant de la famille des polyphénylméthanes.

Dans les FR 2635332, FR 2488269 et FR 2302312 on a décrit des plastifiants du polynorbomène.

Le polynorbornène est le polymère du bicyclo-{2.2.1} heptene ou de l'un de ses dérivés de substitution à chaîne courte. Les plastifiants cités sont soit des hydrocarbures liquides soit des huiles paraffiniques, aromatiques ou naphténiques soit des esters tels que des phtalates. La demande de brevet européen EP 384822 décrit des mélanges de polynorbornène et d'une polyoléfine cristalline avec un plastifiant qui peut être une huile paraffinique ou une huile naphténique. En réalité ces huiles minérales ne sont jamais complètement paraffinique ou complètement aromatique ni complètement naphténique mais contiennent toujours ces trois types de produits en proportion plus ou moins grande.

On a convenu de classer comme suit les huiles selon leur teneur en paraffine et leur viscosity-gravity-constant VGC déterminée selon Hill et Conts Inf. Eng. Chem. 20,64(1928)

Type d'huile	Teneur en hydrocarbure paraffinique (%)	VGC
Paraffinique	> 56	0.79 à 0.85
Naphténique	48 à 56	0,85 à 0.955
Aromatique	15 à 32	0.955 à 1.050
Hautement aromatique	5 à 15	>1,050

Ces huiles minérales sont aussi les plastifiants des élastomères SBR (abréviation de : styrène Butadiène Rubber).

Ces plastifiants ont pour but d'abaisser la température de transition vitreuse des élastomères à base de polynorbornène pour en faire des caoutchoucs, ou d'abaisser la dureté dans le cas des autres élastomères insaturés.

Les huiles minérales aromatiques contiennent des molécules polycycliques telles que le benzopyrène dont la teneur maximale tolérable a été limitée à 0.1 % dans certains pays en raison de leur toxicité (voir l'article de W. HAMANN et R. WOMMELSDORFF dans Kautschuk Gummi .K. 42 6/89).

A ces produits il faut ajouter aussi ceux générés par la dégradation des lourds contenus dans ces huiles lors de leur combustion.

La demanderesse a maintenant trouvé qu'on pouvait remplacer avantageusement ces huiles par des polyphénylméthanes de synthèse. Un avantage est qu'on en connaît la formule, on connaît donc bien les produits de dégradation. Un autre avantage est que la combustion de ces polyphénylméthanes au cours de la destruction des caoutchoucs ne génère pas de produits toxiques.

On a déjà utilisé certains polyphénylméthanes comme plastifiant. La demande japonaise JP 72-113907 déposée le 15 novembre 1970 et publiée le 5 septembre 1974 sous le n° J49093429 cite le 4,6 bis (alpha méthylbenzyl) m-xylène comme plastifiant d'un film constitué d'une résine acrylique, de nitrate de cellulose, de solvant cétonique, de butanol de toluène et d'oxyde de titane. Ce film recouvre une plaque d'acier et a une bonne résistance à la chaleur et à la lumière.

Le 4,5-bis(alphaméthylbenzyl)-o-xylène a aussi été utilisé.

Le brevet GB 841805 cite comme plastifiant du PVC le dibenzylbenzène, le dibenzyltoluène, dixylylxylène et le benzyltoluène.

La demande de brevet hollandais 66-11650 décrit le dibenzyltoluène comme plastifiant du polylauryllactame.

La demande de brevet allemand DE 1228802 décrit le dibenzyltoluène comme stabilisant à la lumière du polyéthylène.

Aucun art antérieur ne concerne les élastomères insaturés.

La présente invention concerne une composition comprenant un élastomère insaturé et un plastifiant de la famille des polyphénylméthanes en quantité suffisante pour abaisser la température de transition vitreuse de l'élastomère pour en faire un caoutchouc.

L'élastomère insaturé est par exemple le polynorbomène, le SBR (abréviation de Styrène Butadiène Rubber), le BR (abréviation de polybutadiène), les copolymères séquencés SBS, le NR (abréviation de Natural Rubber), le polychloroprène (CR), l'EPDM (abréviation de Ethylène Propylène Diène monomère), le NBR (abréviation de Nitrile Butadiène Rubber), le polyisoprène (IR) ou le caoutchouc butyle (IIR).

L'élastomère peut être un mélange de deux ou plusieurs des produits cités ci-dessus ou l'un des produits en mélange avec des polyoléfines. L'élastomère peut être par exemple un mélange de polynorbornène et d'une polyoléfine comme décrit dans le brevet EP 384822.

Les polyphénylméthanes sont des produits de formule (1)

dans laquelle R1, R2 et R4 représentent un ou plusieurs des radicaux suivants :

R3 désignant aussi un ou plusieurs radicaux :

Le nombre total de noyaux aromatiques étant de preference au plus égal à 5.

Ces polyphénylméthanes peuvent être des mélanges d'isomères.

Ces polyphénylméthanes sont par exemple du dibenzyltoluène qui est un mélange d'isomères de formule (1) dans laquelle : R4 est l'hydrogène, R1 représente CH3- et éventuellement le benzyle (C6H5-CH2-)

R2 représente l'hydrogène ou le benzyle.

Le nombre total de noyaux aromatiques étant de 3.

Ce dibenzyltoluène peut aussi contenir un peu de bis-(tolyl)-phenylméthane c'est à dire le produit de formule (1) dans laquelle R4 est le phenyle et R1 et R2 le méthyle.

Les polyphénylméthanes peuvent être aussi du tribenzyltoluène qui est un mélange d'isomères de formule (1) dans laquelle :

R4 est l'hydrogène,

R1 représente le méthyle et éventuellement un ou deux radicaux

R2 représente l'hydrogène et éventuellement un ou deux radicaux

50 R3 étant l'hydrogène ou le benzyle.

Le nombre total de noyaux aromatiques étant 4.

Ce tribenzyltoluène peut aussi contenir un mélange d'isomères de formule (1) dans laquelle :

R4 est

55

5

10

15

20

25

30

35

40

R3

R1 et R2 représentent chacun un méthyle et éventuellement un benzyle.

R3 représente l'hydrogène ou un benzyle.

Le nombre total de noyaux aromatiques étant de 4.

Ces polyphénylméthanes peuvent être aussi un mélange de deux produits A et B (polybenzyltoluènes).

A est un mélange d'isomères de formule (1) dans laquelle :

R4 est l'hydrogène

R1 est un méthyle et éventuellement un ou plusieurs radicaux



20

25

5

10

15

R2 est l'hydrogène et éventuellement un ou plusieurs radicaux

CH2

30

35

R3 est l'hydrogène ou le benzyle.

Le nombre total de noyaux aromatiques étant 4 ou 5.

B est un mélange d'isomères de formule (1) dans laquelle

R4 est



40

45

R1 et R2 sont chacun un méthyle et éventuellement un ou plusieurs



50

55

R3 étant l'hydrogène ou le benzyle.

Le nombre total de noyaux aromatiques étant 4 ou 5

Les 3 exemples précédents à savoir les dibenzyltoluène, tribenzyltoluènes et polybenzyltoluènes contiennent 85.7 % de carbone aromatique.

La quantité de polyphénylméthanes est fonction de la dureté recherchée (mesurée dans l'échelle Shore A). A titre d'exemple dans un élastomère SBR type 1502, contenant 80 parties pcr (pcr = pour cent parties de Rubber/

.

élastomère) de noir de carbone, une quantité de 40 pcr de dibenzyltoluène conduit à une dureté d'environ 60A après vulcanisation au soufre.

Le mélange s'effectue sur mélangeur interne selon les techniques connues.

On peut aussi mélanger ces polyphénylméthanes avec des huiles paraffiniques, dans la mesure où elles sont suffisamment pures, pour ne pas perdre le bénéfice de la présente invention.

La quantité de plastifiant et éventuellement d'huile paraffinique est de préférence inférieure à la limite au dessus de laquelle il y a exsudation.

Ces polyphénylméthanes peuvent être préparés par exemple selon les procédés décrits dans les brevets EP 136230 et EP 422986.

#### EXEMPLES 1 à 4

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

On compare les propriétés d'un polynorbornène plastifié avec une huile naphténique ELF XT 8440, une huile paraffinique ESSO EZL 675 et un mélange de cette huile paraffinique avec le BT2.

Le BT2 est un mélange d'isomères du dibenzyltoluène selon la présente invention. C'est le produit défini plus haut et ayant 3 noyaux aromatiques. Il est exempt d'impuretés toxiques, irritantes ou nocives au titre des directives CEE 79/831 et 83/467. Le bis(tolyl)phenylméthane représente 5 % en poids de ce BT2.

L'huile naphténique est celle vendue sous le nom de ELF XT 8440. Ses caractéristiques ainsi que celles du BT2 sont les suivantes :

EXL 8440	, BT2
0,885	1,04
1,505 - 1,510	1,603
21	17
3,8	3,3
190	197
environ -50	•
environ 30	<-15
1,9	0,8
	0,885 1,505 - 1,510 21 3,8 190 environ -50 environ 30

L'huile paraffinique est la EZL 675 de ESSO, ses caractéristiques sont :

CARACTERISTIQUES	METHODES	UNITES	EZL 675
Viscosité cinématique 20°C	NF T 60-100		
40°C 50°C 50°C		mm²/s mm²/s mm²/s	81.5 32.5 21.4
100°C	NF T 60-136		3.1 108
Couleur SAYBOLT	NF M 07-003	cotation	+23
Masse volumique à 15°C	NF T 60-101	kg/m3	866

(suite)

CARACTERISTIQUES	METHODES	UNITES	EZL 675
Point d'éclair V.O.	NF T 60-118	•c	226
Point d'écoulement	NF T 60-105	°C	-6
Point d'aniline	NF M 07-021	°C	106
Indice d'acide	NF T 60-112	mg KOH/g	0.02
Soufre	NF M 07-026	% masse	0.1
Indice de réfraction à 20°C	NF T 60-212		
Volatilité 3j 100°	Perte de poids	% .	0,1
Type de Carbones	ASTM D 2140		
aromatiques		%	3
paraffiniques		%	66
naphténiques		%	31

Le polynorbomène est un produit commercialisé par la société ELF ATOCHEM sous le nom de marque NORSO-REX, décrit dans le brevet US 3676390.

Les mélanges de polynorbomène et d'huile sont préparés sur un mélangeur interne de marque RERIQUET R10 chauffé à 70° pendant une durée de 4,5 min. Leur propriétés après plastification sont données dans le tableau I.

# EXEMPLE 1 COMPARATIF

5

10

15

30

35

40

45

50

Le mélange de référence est bien compatible avec une viscosité relativement élevée - pas d'exsudation au stockage.

La perte de poids et l'augmentation de dureté après vieillissement sont relativement élevés.

# **EXEMPLE 2 COMPARATIF**

Ce mélange avec huile paraffinique est incompatible (exsudation, viscosité faible) - perte de poids faible car cette huile possède un point éclair très élevé.

# **EXEMPLE 3**

Mélange réalisé avec BT2.

En raison de son caractère hautement aromatique l'huile BT2 à un point d'aniline particulièrement bas. L'huile BT2 se caractérise par une très bonne compatibilité avec le polynorbornène (pas d'exsudation, viscosité élevée). Cependant, l'augmentation de dureté après vieillissement est élevée car le BT2 est relativement volatile.

#### **EXEMPLE 4**

Bonne compatibilité avec le polynorbornène. Le vieillissement à 100° C est bon (augmentation de dureté limitée).

# TABLEAU I

	EXEMPLES			
	1 comp.	2 comp.	3	4
Norsorex	100	100	100	100
huile paraffinique EZL100	-	150	-	105
BT2	-	-	150	45
huile naphténique XT8440	150	-		_
Aspect après 24 h	Sec	Exsudation	sec	sec
Consistance Mooney ML 1 + 4 & 100°	48	40	67	49
Perte de poids (3j/100°) %	16	1,4	7,5	7,3
Variation de dureté A	22 + 10	22 + 4	26 + 7	22 + 4

# EXEMPLE 5 a 11

25

30

15

20

On compare différents polyphénylméthanes selon l'invention avec une huile minérale aromatique dans une formule à base de caoutchouc SBR utilisé pour la fabrication des pneumatiques.

La formulation du SBR est la suivante :

SBR 1502	100
ZnO	2
Acide Stéarique	1
Noir de carbone (N220)	80
Cire antiozone	2
Antioxydant Permanax TQ	1,4
CBS	1,5
Soufre	2
Huile	20 et 40

40

35

Les mélanges ont été réalisés sur un mélangeur interne Intermix. Les différentes huiles sont :

- le BT3 (Tribenzyltoluène cité dans la description),
  - le PBT (polybenzyltoluène cité dans la description),
  - une huile aromatique Dutrex 729 largement utilisée pour plastifier le SBR notamment en raison des bonnes propriétés mécaniques des caoutchouc. Les principales caractéristiques physicochimiques de ces plastifiants sont les suivantes :

50

BT3 Dutrex 729 Densité à 20°/4° 1,04 1,01 Indice de réfraction 1,619 1,571 Point d'aniline <-15° 25° Point éclair 237 224 VGC 1,058 0,976 Classification Hautement Aromatique aromatique

15

20

5

10

Malgré leur caractère hautement aromatique les polyphénylméthanes sont dépourvus de constituants polycycliques lourds.

Les différentes formulations d'élastomère étudiées ont été vulcanisées en moulage par compression de plaques à 170° pendant 12 minutes. Les tests mécaniques sont réalisés sur éprouvettes découpées dans ces plaques. Les résultats sont reportés dans le TABLEAU II.

#### TABLEAU II

25

30

35

40

**EXEMPLES** RIEMPLES COMPARATIFS 6 8 10 11 Formulation SBR 100 100 100 100 100 100 BT3 20 40 PBT 20 40 Dutrex 729 20 40 T98 11,1 11.3 12.4 11,1 13,5 12,3 Résistance à la rupture 25 19 21 20 22 19 RR (MPa) Allongement la 310 500 380 540 380 510 Rupture AR (%) Dureté à 75 67 56 53 60 61 Hooney ML 1 + 4 122 72 87 56 82 47 Vicillissement, (28)/100°) 58 47 52 46 55 55 conservation de longement (% par rapport à l'initial)

Les plastifiants PBT et BT3 égalent l'huile minérale aromatique de rétérence pour l'ensemble des propriétés spécifiques mesurées du tableau ainsi que pour la fragilité à froid (-48 dans tous les cas), et le test de torsion Gehman à froid.

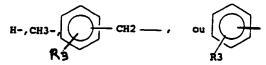
#### Revendications

50

1. Composition comprenant un élastomère insaturé et un plastifiant de la famille des polyphénylméthanes en quantité suffisante pour abaisser la température de transition vitreuse de l'élastomère pour en faire un caoutchouc, caractérisée en ce que les polyphénylméthanes sont choisis parmi les produits de la formule (1):

dans laquelle

R1, R2 et R4 représentent un ou plusieurs des radicaux suivants



R3 désignant aussi un ou plusieurs des radicaux suivants

- 2. Composition selon la revendication 1 caractérisée en ce qu'elle comprend aussi une huile paraffinique.
  - Composition selon l'une des revendications 1 ou 2 caractérisée en ce que l'élastomère insaturé est du polynorbornène, du SBR ou du polybutadiène.

### 30 Patentansprüche

10

15

20

25

35

40

50

55

 Zusammensetzung, enthaltend ein ungesättigtes Elastomer und einen Weichmacher aus der Familie der Polyphenylmethane in einer zur Absenkung der Glasübergangstemperatur des Elastomers ausreichenden Menge, um daraus einen Kautschuk zu bilden, dadurch gekennzeichnet, daß die Polyphenylmethane ausgewählt sind aus Produkten der Formel (1)

in der R1, R2 und R4 einen oder mehrere der folgenden Reste darstellen:

wobei R³ ebenfalls einen oder mehrere der folgenden Reste bezeichnet

- 2. Zusammensetzung nach Anspruch 1. dadurch gekennzeichnet, daß sie auch ein paraffinisches Öl enthält.
- 3. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche oder 2. dadurch gekennzeichnet, daß das ungesättigte Elastomer

Polynorbornen, SBR (Styrol/Butadien-Gummi) oder Polybutadien ist.

#### Claims

5

10

15

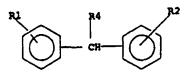
20

25

30

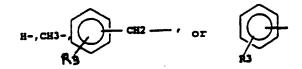
40

Composition comprising an unsaturated elastomer and a plasticizer of the polyphenylmethane class in a sufficient
quantity to lower the glass transition temperature of the elastomer to make it a rubber, characterized in that the
polyphenylmethanes are chosen from the products of formula (1):

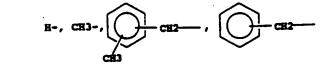


in which

R1, R2 and R4 denote one or more of the following radicals



R3 also denoting one or more of the following radicals



- Composition according to Claim 1, characterized in that it also includes a paraffinic oil.
  - Composition according to one of Claims 1 and 2, characterized in that the unsaturated elastomer is polynorbornene, SBR or polybutadiene.

50

45